

⑨ 日本国特許庁 (JP)
 ⑩ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開

昭57-63311

⑫ Int. Cl.³
 C 08 F 10/00
 4/02
 4/64

識別記号 106
 場内整理番号 7823-4J

⑬ 公開 昭和57年(1982)4月16日
 発明の数 4
 審査請求 未請求
 (全 10 頁)

⑭ オレフィンの重合用の成分及び触媒

⑮ 特願 昭56-126026

⑯ 出願 昭56(1981)8月13日

優先権主張 ⑭ 1980年8月13日 ⑮ イタリア
 (I T) ⑯ 24141A / 80

⑰ 発明者 サンドロ・パロディ
 イタリー国ノヴァラ・オレツジ
 ヨ・ヴィアディネグリ 4

⑰ 発明者 ロベルト・ノツチ
 イタリー国ノヴァラ・コルソ X
 X Ⅲ マルツオ 170

⑰ 発明者 ウムベルト・ジャシニーニ

イタリー国ミラノ・ヴィアシス
 モンティ 53

⑰ 発明者 ピエール・カミロ・バルベ
 イタリー国フェラーラ・ヴィア
 バヴオーネ 3

⑰ 発明者 ウムベルト・スカタ
 イタリー国フェラーラ・ヴィア
 シーバティスティ 31

⑯ 出願人 モンテジソン・ソチエタ・ベル
 ネ・アチオニ
 イタリー国ミラノ・フォロボナ
 パルテ 31

⑯ 代理人 弁理士 小田島平吉

明細書

1 [発明の名称]

オレフィンの重合用の成分及び触媒

2 [特許請求の範囲]

1. 必須組体としての活性形の Mg ハロゲン化物、並びに Mg ハロゲン化合物上に担持されている Ti^{4+} -ハライド又は Ti^{4+} -ハロアルコレート及び下記の群の化合物から選択された電子供与体化合物：

1.1 オルト位に $C(=O)OR$ 基を有する芳香族ジカルボン酸のモノ及びジエステルであつて、その $C(=O)OR$ 基のヒドロカルビル基が3個未満の炭素原子を含み且つ炭素の少なくとも1個は炭素原子2個を含むモノ及びジエステル。

1.2 式 $RCOOOR'$ (ここで、ヒドロカルビル基 R' は炭素数が3~20の飽和もしくは

不飽和の分枝鎖状の基又は炭素数が7~20のアリールアルキル基であるか、或は R' はエステル基カルボニル基に直接もしくはメチレン基を介している炭素数が3~20のアリール基であり、そして、 R' は炭素数が3より少ないヒドロカルビル基である)の飽和及び不飽和カルボン酸のエステル。

からなり、アルファ-オレフィンの重合用触媒を形成するために Al -アルキル化合物及び1個以上の $Si-O-R$ 、 $Si-O-C(=O)R$ 又は $Si-NR_2$ 化合(R はヒドロカルビル基である)を含有しているケイ素化合物と組み合わせて使用される固体成分。

2. 膜 Mg ハロゲン化合物が Mg ジハライドである特許請求の範囲第1項記載の固体成分。

3. 膜 Mg ハロゲン化合物が Mg ジクロライド又は Mg ジブロマイドであり、該 Ti^{4+} ハライドが

T_1 テトラハライドであり、そして電子供与体化合物がジエチルフタレート、メチル-及びエチル-ビバレート、メチル-及びエチル-メタクリレートである、特許請求の範囲第1項記載の固体成分。

4. 下記成分：

- a) Al -アルキル化合物、
- b) 1個以上の $Si-O-R$ 、 $Si-OCOR$ 又は $Si-NR_2$ 結合（ここで R はヒドロカルビル基である）を含有しているケイ素化合物、
- c) 特許請求の範囲第1項～第3項に記載されている如き固体成分。

の反応生成物からなる、アルファ-オレフィンの重合用触媒。

5. 該 Al -アルキル化合物が、 Al -トリアルキル或は最もしくは炭素原子を介して、又は SO 、もしくは Si 基を介して互に結合してい

るオレフィンとエチレンの混合物の重合方法。

9. 特許請求の範囲第8項記載の方法で得られたアルファ-オレフィンの重合体。

3. [発明の詳細を説明]

本発明は、 $CH_2=CH$ オレフィン（ここで n は炭素数が1～4のアルキル基又はアリール基である）及び該オレフィンとエチレンの混合物の重合用触媒の形成に有用な新規な固体成分、並びに該成分から形成された触媒、更には重合方法に関するものである。

今までに知られているブレビレン及びそれより高級なオレフィンの重合用の担持されている高活性のそして高級に立体特異性の触媒は、電子供与体化合物（外部電子供与体）で部分的に錯体化されている Al -アルキル化合物を、活性形の Mg -ハライド上に担持されている T_1 化合物及び電子供与体化合物（内部電子供与体）からなる固体

る2個以上の Al 原子を含有している Al -アルキル化合物である特許請求の範囲第4項記載の触媒。

6. 成分b)のケイ素化合物がフェニルトリ-アルコキシラン又はジフェニルジアルコキシラン又はアルキルジ-もしくはトリ-アルコキシランである、特許請求の範囲第4項もしくは第5項記載の触媒。

7. 成分c)が特許請求の範囲第2項もしくは第3項記載の固体成分である、特許請求の範囲第6項記載の触媒。

8. 重合方法を液相で不活性炭化水素溶媒の存在もしくは不存在下で又は気相で、特許請求の範囲第4項～第7項のいづれかに記載の触媒の存在下で、実油することを特徴とする、アルファ-オレフィン $CH_2=CHR$ （ここで R は炭素数が1～4のアルキル基又はアリール基である）及び

成分と反応させることにより得られる。

そのような触媒の例は英國特許1559194及びベルギー特許868682中に記載されている。

$Si-O-C$ 結合を含有しているケイ素化合物からなる外部電子供与体も記されている〔特開昭54-24590号及び特開昭55-136203号〕。種々のそして多種の内部電子供与体の中には、メタクリル酸メチル及びビバリン酸エチルの如き化合物も挙げられている。しかしながら、

$Si-O-C$ 結合を含有しているケイ素化合物を外部電子供与体として使用する全ての先行技術の触媒においては、主として安息香酸のエステル及びそれらの誘導体が内部電子供与体として使用される。

活性及び立体特異性という點で表わされている上記の触媒の性能は、安息香酸エチル及び安息

香酸の同様なエステルを外部電子供与体として使用する触媒の性能と変わりない。今回、特別な構造を有するエステルを内部電子供与体として使用することにより、意外なことも、Si-O-C結合を含有しているケイ素化合物を外部電子供与体としてなる先行技術の担持触媒の活性及び立体特異性を増大できることが発見された。

本発明の触媒は、下記の成分の反応生成物からなつていて、

- a) Al-アルキル化合物。たとえばAl-トリアルキル或は酸素もしくは炭素原子を介して又はSi、もしくはSi₂基を介して互に結合している2個以上のAl原子を含有しているAl-アルキル化合物、
- b) 1個以上のSi-O-R、Si-OCOOR又はSi-NH₂結合（ここでRはヒドロカルビル基である）を含有しているケイ素化合物。

ン基を介して結合している炭素数が3~20のアリール基であり、そして、R'は炭素数が3より少ないヒドロカルビル基であるといふ既知及び不飽和カルボン酸のエステル。

好適な代表的電子供与体化合物は下記のものである：ジエチルフタレート、メチルエチルフタレート、ジエチル-2,3-ナフタレンジカルボキシレート、メチル-及びエチル-ビバレート、メチル-及びエチル-メタクリレート。ポリカルボン酸のエステルはエステル基の他にエステル化されていないCOOHも含有するとともできる。成分c)の製造においては、エステルを活性形のMgハロゲン化合物たとえば活性Mgジハライドもしくは予測め形成された該ジハライドの先駆体と接触させて製造することができる。更に、例えばアルコールとアリールハライドの間のエステル化により、又はポリカルボン酸の無水物もしくは

c) 必須担体としての活性形のMgハロゲン化合物好ましくはMgジハライド、並びにMgハロゲン化合物上に担持されているTi-ハライド又はTi-ハロアルコレート及び下記の群の化合物から選択された電子供与体化合物：

- 1) オルト位置にCOOH基を有する芳香族ジカルボン酸のモノ及びジエステルであつて、そのCOOH基のヒドロカルビル基Rが3個未満の炭素原子を含み且つ該基の少なくとも1個は炭素原子2個を含むモノ及びジエステル。
- 2) 式R'COOK'（ここで、ヒドロカルビル基Rは既知、炭素数が3~20の飽和もしくは不飽和の分枝鎖状の基又は炭素数が7~20のアリールアルキル基であるか、又はRはエステル系カルボニル基に直接もしくはメテ

ルエステルとアルコールの間のエステル化により、又はエステル交換による如き公知の反応によりエステルをその場で製造することができる。エステルは他の公知の内部電子供与体と併用することができる。成分c)の必須担体を形成する活性形のMgハロゲン化合物たとえば活性を無水Mgジハライドは、成分c)のX線粉末スペクトル中で100/8の表面積を有するジハライドの粉末スペクトル中に現れる最も強い回折線の少なくとも30%の広がりを示すMgジハライドであるか、又は該強度ピークが最強線の面間距離に従してシフトしているハロにより直き換わつているようなX線粉末スペクトルを示すMgジハライドであるか、又は100/8より大きい表面積を有するMgジハライドである。

Mgジハライドの表面積の測定は、成分c)を沸騰TiCl₄で2時間処理した後に行なわれる。

測定値を Mg ジハライドの表面積とする。 Mg ジハライドの非常に活性な形は、1 m^2/g の表面積を有する対応するジハライドのスペクトル中に現われる最も強い回折線が相対的強度において減少しそして広がつてハロを形成するようなX線粉末スペクトルを示すものであるか、又は最も強い線が面間距離に関してシフトしたハロにより書き換わっているようなものである。一般に、上記の形の表面積は30～40 m^2/g より大きく、そして特には100～300 m^2/g である。

活性形は、上記の形から、不活性炭化水素溶液中での成分c)の熱処理によつても誘導でき、それはX線スペクトル中でハロの代りに弱い回折線を示すものである。

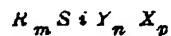
これらの形の弱い最強線は、いずれの場合にも、1 m^2/g の表面積を有する Mg ジハライドの対応する線に関して少なくとも30%の広がりを示し

いても実施できる。化合物b)を加えそして成分c)自身と反応させることもできる。成分b)を、

成分c)上に担持されているハロゲン化Ti化合物^{成分c)}として使用されているアルキル化合物に当して物に関して少なくとも1のモル比で、そして20より少ない、好適には0.05～0.3の間のモル比で反応させることができる。

成分c)においては、 Mg ジハライド及びそれに担持されているハロゲン化Ti化合物の間のモル比は1～500の間であり、そして Mg ジハライド上に担持されている酸ハロゲン化Ti化合物及び電子供与体の間のモル比は0.1～50の間である。

b)に示されているケイ素化合物には、一般式



〔式中、Rは炭素数が1～20のアルキル、アルケニル、アリール、アリールアルキル、シクロアルキル基であり。〕

ている。好適な Mg ジハライドは Mg ジクロライド及び Mg ジブロマイドである。ジハライドの含水量は一般に1重量%より少ない。

活性 Mg ジハライド上に担持されている Ti ハライド又は Ti ハロアルコレート及びエステルとは、担体上に化学的もしくは物理的に固着され、成分a)を沸騰している1,2-ジクロロエタンで2時間処理することによつても成分a)から抽出できないような上記の化合物を意味する。

成分a)、b)及びc)は互いにいずれの順序でも反応させられるが、好適には成分a)及びb)を予備混合し、その後成分c)と接触させる。

成分c)を成分a)及びb)又はc)と予備混合させることもできる。a)及びb)の予備混合は、普通、室温乃至重合温度の間の温度において行なうことができる。

a)及びb)の予備反応は比較的高い温度にお

Y は $-OR'$ 、 $-OCOR'$ 、 $-NR_1'$ であり。ここで R' はRとは同一であるか又は異なるつておりそしてRと同じ意味を有し。
 X はハロゲンもしくは水素原子又は $-OCU$
 R'' 、 $-NR_2''$ 基であり、ここで R'' は R' と等しいか又は異なるつており、そして R' と同じ意味を有し。

m 、 n 及び p はそれぞれ、 m は0～9、 n は1～4そして p は0～1の数であり、そして $m+n+p$ は4に等しい。〕

の化合物が包含される。

使用できる他のケイ素化合物は、2個以上のケイ素原子が、酸素又は氫素原子を介して、互いに結合されているような化合物である。

これらの化合物の例は、ヘキサエトキシジシロキサン、対称性ジフェニルテトラエトキシジシロキサン

Ti 化合物及び電子供与体化合物と反応させる。
他の方法はドイツ特許出願公開 2924028、
米国特許 4,220,554 並びにイタリア特許出願
27,261/79 中に記されている。

他の方法は、 Mg ジハライド、ハロゲン化 Ti 化合物電子供与体化合物を Mg ジハライドの活性化まで一緒に粉碎し、そして粉碎された生成物をハロゲン化炭化水素、例えば 1,2-ジクロロエタン、クロロベンゼン、塩化メチレン、ヘキサクロロエタン、中に加熱処理することからなつていて、

処理は 40 度乃至ハロゲン化炭化水素の沸点の温度において、一般に 1~4 時間の範囲の時間にわたって行なうことができる。

他の方法によると、低い H 含有量（好適には 1 千部% 以下）を有する SiO_2 又は Al_2O_3 のような多孔性担体に、粒状の Mg ジハライドなど

又は Mg ジハライドの電子供与体（たとえば、アルコール、エーテルなど）浴液を含浸させ、次にこの担体を例えばドイツ特許出願公開 3,022,738 又はベルギー特許 868,682 中に記されている方法に従つて、溶解されている電子供与体化合物を含有している過剰の $TiCl_4$ で処理する。

上記の全ての方法では、最終生成物は、上記の活性形で存在している Mg ジハライドを含有している。

活性形の Mg ジハライドを生成するため、又はジハライドが活性形で存在しているようを Ti 含有 Mg ジハライド担持成分を生成するための他の公知の方法の例としては下記の如き反応があげられる。

— グリニヤール試薬又は MgR_2 化合物（ R はヒドロカルビル基である）又は液 MgR_2 化合物と Al -トリアルキルとの錯体、及びハ

ロゲン化剤、例えば AlX_3 もしくは AlR_mX_n 化合物（ X はハロゲンであり、 R はヒドロカルビルであり、 $m+n=3$ である）、 $SiCl_4$ 又は $HSiCl_3$ の反応、

— グリニヤール試薬とシラノールもしくはボリシロキサン、 H_2O 又はアルコールとの反応及びその後のハロゲン化剤又は $TiCl_4$ との反応、

— Mg とアルコール及びハロゲン化炭化水素との反応又は Mg とヒドロカルビルハライド及びアルコールとの反応

— MgO と Cl_2 又は $AlCl_3$ との反応、

— $MgX_2 \cdot nH_2O$ (X =ハロゲン) とハロゲン化剤又は $TiCl_4$ との反応、

— Mg モノもしくはジアルコレート又は Mg カルボキシレートとハロゲン化剤との反応。

Ti -ハライド又は Ti -ハロゲンアルコレート

トには特に、 Ti -テトラハライド、 Ti -トリハライド及び Ti -トリハロゲンアルコレートが含まれる。好適な化合物は、 $TiCl_4$ 、 $TiBr_4$ 、2,6-ジメチルフェノキシトリクロロチタンである。

Ti -トリハライドは公知の方法により、例えば $TiCl_4$ を Al もしくは有機金属 Al 化合物を用いて又は水素を用いて還元することにより、得られる。

Ti -トリハライドの場合、触媒性能を改良する目的のためには、チタンの酸化（過分的であつてもよい）を、成分①の製造中又は後に行なうことが簡便である。この目的用には、ハロゲン、ヨウ素ハライドを使用できる。

好適な触媒は、成分①が $MgCl_2$ 、 $TiCl_4$ 及びマレイン酸、ビバリン酸及びフタル酸のエステルから得られ、そして成分②がフェニル-も

しくはエチル-トリエトキシシラン又はジフェニルジメトキシ-もしくはジフェニルジエトキシシランであるものである。

成分c)はAl-トリアルキル例えばAl-トリエチル又はAl-トリイソブチル、である。

成分c)は英國特許1,559,194、ベルギー特許868,682、ドイツ特許出願公開2,924,029、米国特許4,220,554、イタリア特許出願2,726,179又はドイツ特許出願公開3,002,738中に記されている方法に従つて製造できる。

成分c)の好適な製造方法は、 $MgCl_2$ 、 $TiCl_4$ 、及びエステルと一緒に粉碎しそして粉碎された生成物をハロゲン化された成化水素、例えば1,2-ジクロロエタン、で処理することも包含している。

本発明に従う触媒は、アルファ-オレフィンを

合体を得るためにも使用できる。

下記の実施例は単に説明目的のために示されているものであり、本発明の範囲を限定しようとするものではない。

実施例 1~2

固体触媒成分の調製：

ヨーロッパ特許出願公開公報第2,923,2号の実施例1に従つて、以下のようにして固体触媒成分を調製した。

① 粉碎

86.8 gの無水 $MgCl_2$ （1%より少ない水含有量）、表1に記載されたエステル及び1.9 gのビニル-トリエトキシシラン（VTS）（エステル/VTSのモル比=1.75及び $MgCl_2$ ／（エステル+VTS）のモル比=4.5に相当する）を1000ccの全容量を有しそして84.85 gの直径が1.58 mmのイノックス鋼（3%Z

公知の方法により重合するために、すなわち重合を液相で不活性炭化水素溶媒の存在下もしくは不存在下で、又は気相で、又は例えば液相重合段階と気相段階を組み合わせることにより実施する際に、使用できる。一般に、温度は40°~160°の間、好適には60°~90°の間、であり、大気圧以上の圧力において行なうことができる。

分子量調節剤として、水素又は他の公知の型の調節剤が使用できる。

これらの触媒は、プロピレン、ブテン-1、ステレン、4-メチルベンゼンの重合において特に良好に使用できる。該触媒はまた、公知の方法に従つて、プロピレン及びエチレンを重合させて低圧における比較的の良好な耐衝撃性を有する改質ポリプロピレン（いわゆるプロピレン及びエチレンのブロック共重合体）を製造するため、又はプロピレンと少割合のエチレンの結晶性ランダム共重

合体を有する球を含有しているスープテクニク（SIEBTECHNIK）型のビブラトム（VIBRATUM）型の振動ミル中で共粉碎した。

粉碎は1/8の全容量当り120gに等しい充填効率を適用させて、約70°のミル内部温度においてそして60時間の粉碎時間にわたつて行なわれた。

粉碎された生成物のミルへの充填、引き続いての粉碎及び粉碎された生成物のミルからの除去は、乾燥室を脱気下で行なわれる。

② $TiCl_4$ を用いる処理

25gの共粉碎された生成物を依然として窒素気流下で500°の反応器中に移し、その中でそれらを810°の $TiCl_4$ と接触させた。

$TiCl_4$ を用いる処理は、100°で搅拌しながら80°で2時間にわたつて行なわれ、

その後過剰の $TiCl_4$ 及びその中に溶解された生成物を 80℃でサイホンにより除去した。

この操作の次に 65℃のエタンを 1 回の洗浄毎に 200cc を用いて 5 回洗浄した。

どのようにして製造された触媒成分は、1/8/9 の表面積を有する $MgCl_2$ のスペクトル中に現われる最も強い回折線が相対的強度において減少しそして広がつてハロを生成するような X 線粉末スペクトルを示した。

プロピレンの重合：

60℃で維持された硝素ガスによる圧力下に保持されている、磁気懸抨器及び熱電対を備えている 80 の全容積を有するステンレス鋼オートクレーブ中に、5 ミリモルのトリエチルアルミニウム、フェニルトリエトキシシラン (PMS) 及び上記で調製した固体触媒成分を含有しているガス抜きされた無水ヨウ化水素中で 70℃において乾燥した。

触媒成分の表面積及びナトラリン中で 135℃において測定された固有粘度を表 1 に示す。

実施例 3

下記の如くして製造された固体触媒成分を用いて実施例 1 を複数回した。無水 $MgCl_2$ 、表 1 に挙げられているエステル、及びエステルに関する 1:1 のモル比の $TiCl_4$ を、1/8 の全容積を有しそして 3kg の直径が 1.6cm のステンレス鋼球を含有している N.V. テマ社、グラベンハーグ (オランダ) 製の VIBRATOM 型の振動ミル中で粉砕した。粉砕は 100g / 全容積 (空) と 10 分の充填率を用いて 25℃のミルの内部温度において、72 時間にわたつて行なわれた。ミルの充填、粉砕、及びミルの排出は硝素ガス下で行なわれた。10g の共粉砕生成物を 100cc の 1,2-ジクロロエタンと 80℃において 2 時間接触させた。この時間後、1,2-ジクロロ

加え、その間にプロピレンも供給した。オートクレーブを閉じ、その後水素を 0.2 気圧までの圧力で加え、温度を 70℃にあげ、そして同時にプロピレンを 7 気圧の全圧となるまで加えた。重合中、単位体を連続的に供給することにより圧力を一定に保つた。4 時間後、重合体スラリーを急速に冷却しそしてガス抜きすることにより重合を停止させた。重合体を沪過により粗粒から分離し、そして熱い硝酸液中で 70℃において乾燥した。次に沪液中に溶解されているる量の重合体を単離し、重量測定し、そしてアイソタクチック指数 (I.I.) の計算のために溶解しているヨウ化水素中で可溶性である重合体の重量と合計した。触媒成分の使用量並びに該成分中の Ti 含有量、トリエチルアルミニウムに関するフェニルエトキシシランのモル比、加えられた触媒成分に関する重合体の収率、アイソタクチック指数 (I.I.)、固体

エタンを 80℃において沪過により除去し、そして残っている固体生成物を、沪液から無水イオンが消えるまで、室温においてヨウ化水素中で溶解し洗浄し、次にヘブタンで脱溶液中に保つた。このようにして製造された触媒成分は、1/8/9 の表面積を有する $MgCl_2$ のスペクトル中に現われる最も強い回折線が相対的強度において減少しそして広がつてハロを生成するような X 線粉末スペクトルを示した。エステル、固体触媒成分の特徴及び重合試験の結果を表 1 に示す。

実施例 4

実施例 1 を複数回したが、イタリア特許出願 2,690,841 / 78 (特開昭 55-29591 号) の実施例 1 と同様な方法で製造した球状粒子形の固体付加物 $MgCl_2 \cdot 3C_2H_5OH$ を $TiCl_4$ - モノエチルフタレート付加物の $TiCl_4$ 濃湯液に、6 の Hg / モノエチルフタレートモル比及び 1/2 の

特開昭57-63311(9)

$TiCl_4$ / C_2H_5OH モル比を用いて、ゆつくりと加えた。次に全体を 100°C に加熱し、この温度で 2 時間保つ、その後 100°C で戻した。生成した固体生成物を 120°C で 2 時間にわたつて 110°C の $TiCl_4$ で処理した。この時間後に、 $TiCl_4$ を戻地により除去し、固体を次に 90°C から室温に降下する温度において、塩素イオンが戻液から消えるまで、 n -ヘブタンで洗浄し、そして次にヘブタン浴液中に保つた。このようにして生成された粒度は、実施例 1 の触媒成分のそれと同じ X 線スペクトルを示した。エスチル、固体触媒成分の特徴及び重合試験の結果を表 1 に示す。

実施例 1 及び 2

実施例 1 において、ジエチルフタレートの代わりに 19.3% のエチルベンゾエートを用いるほかは同様にして固体触媒成分を調製した。X 線粉末

スペクトルは実施例 1 の触媒成分のそれと同様であつた。得られた固体触媒成分を用いて、実施例 1 と同様の方法でプロピレンの重合を行なつた。

実施例 3

実施例 4 において、モノエチルフタレートの代りにエチルベンゾエートを用いるほかは同様にして固体触媒成分を調製した。その触媒成分の X 線スペクトルは実施例 1 ~ 2 のそれと同様であつた。得られた固体触媒成分を用いて実施例 4 と同様にしてプロピレンの重合を行なつた。固体生成物の特徴及び重合試験の結果を表 1 に示す。

表 1

実施例 番号	固体触媒成分 エスチル モル/モル	固体成分の $TiCl_4$ 含有率 重量%	重合					
			$Al(C_2H_5)_3$		吸 収 率 吸 取 合 体 モル/モル	I. I.	90°C 粘度 dS/1g	
			PES	触媒 モル/モル				
1	ジエチルフタレート	1.4	2.3	2.0	5.0	7.800	9.33	1.4
2	エチルメタクリレート	7	2.0	1.0	4.7	7.000	9.07	1.3
3	エチルベンゾイルアセチ ート	7	2.2	1.0	4.3	4.900	9.54	1.2
4	モノエチルフタレート	6	2.8	2.0	2.6	6.000	9.69	1.3
比較例 1)	エチルベンゾエート	7	2.0	1.0	4.6	6.000	9.06	1.4
比較例 2	エチルベンゾエート	7	2.0	6	4.7	4.000	9.27	1.6
比較例 3	エチルベンゾエート	3.8	3	4.5	4.600	9.4	1.5	

手 続 補 正 書

昭和 56 年 10 月 23 日

特許庁技官 島 田 春 南 殿

1. 事件の表示

昭和 56 年特許第 126026 号

2. 発明の名称

オレフィンの高圧用の成分及び組成

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 イタリー・ミラノ・フォロボナバルド 31

名 称 モンテジン・ソチエタ・ペル・アチオニ
(氏名)

4. 代 理 人 〒 107

住所 東京都港区赤坂 1 丁目 9 番 15 号
日本自動車会館



氏名 (6078) 弁理士 小田島 平吉

住所

氏名 (自括)

5. 補正命令の日付 昭和 56 年 10 月 23 日 (第 2 回)

6. 補正の対象

明細書の“発明の詳細な説明”の欄

7. 補正の内容

別紙のとおり。

特許庁

手 続 補 正 書

昭和 56 年 11 月 13 日

特許庁技官 島 田 春 南 殿

1. 事件の表示

昭和 56 年特許第 126026 号

2. 発明の名称

オレフィンの高圧用の成分及び組成

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 イタリー・ミラノ・フォロボナバルド 31

名 称 モンテジン・ソチエタ・ペル・アチオニ
(氏名)

4. 代 理 人 〒 107

住所 東京都港区赤坂 1 丁目 9 番 15 号
日本自動車会館



氏名 (6078) 弁理士 小田島 平吉

住所

氏名 (自括)

5. 補正命令の日付 昭和 56 年 11 月 13 日 (第 2 回)

6. 補正の対象

明細書の“発明の詳細な説明”の欄

7. 補正の内容

別紙のとおり。

特許庁
56.11.13

特開昭 57-63311 (10)

(1) 明細書第 19 頁末行に、「液状の Mg ジヘライド」とある前に、「液状の Mg ハロゲン化合物たとえば」と加入する。

(2) 明細書第 20 頁 5 ~ 6 行に、「溶解されている……含有している」とあるを、「電子供与体の存在下に」と訂正する。

(3) 明細書第 27 頁 3 行に「エタン」とあるを、「ヘキサン」と訂正する。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning these documents will not correct the image
problems checked, please do not report these problems to
the IFW Image Problem Mailbox.**